

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION
EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la Propriété
Intellectuelle
Bureau international



(43) Date de la publication internationale
24 novembre 2005 (24.11.2005)

PCT

(10) Numéro de publication internationale
WO 2005/109985 A3

(51) Classification internationale des brevets :
G21K 1/00 (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :
PCT/EP2005/051404

(22) Date de dépôt international : 27 mars 2005 (27.03.2005)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :
0403905 13 avril 2004 (13.04.2004) FR

(71) Déposant (pour tous les États désignés sauf US) :
E-QUANTIC COMMUNICATIONS [FR/FR]; Allée
des Chériniers, F-03190 GIVARLAIS (FR).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement) : **DES-
BRANDES, Robert** [FR/FR]; Allée des Chériniers,

F-03190 GIVARLAIS (FR). **VAN GENT, Daniel Lee**
[US/US]; 10927 Del Cano Avenue, BATON ROUGE,
Louisiana 70816 (US).

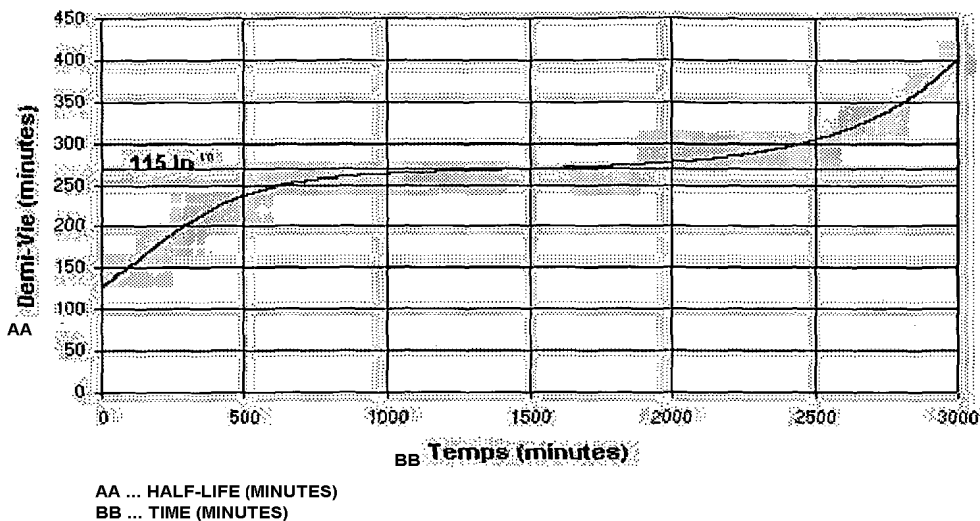
(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de
protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM, AT,
AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO,
CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB,
GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP,
KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK,
MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL,
PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM,
TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM,
ZW.

(84) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre
de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, GH,
GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),
européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR MODIFYING THE DEEXCITATION PROBABILITY OF NUCLEAR ISOMERS

(54) Titre : PROCEDE ET APPAREILLAGE POUR MODIFIER LA PROBABILITE DE DESEXCITATION DES NUCLEIDES
ISOMERES.



(57) Abstract: The invention relates to a method and device for modifying the probability of deexcitation in relation to nuclear iso-
mers, consisting in exciting samples containing nuclides having a metastable state with a half-life varying between one microsecond
and 50 years. The excitation is achieved by means of a radioactive isotope which emits cascade gamma-rays or a collision between
accelerated particles and a target caused by the Bremsstrahlung effect. According to quantum mechanics, the gamma-rays produced
are entangled, and said entanglement is transferred to the nuclear isomers. As a result, each isomer of the radioactive product ob-
tained has a half-life which can vary over time and which is initially higher than the theoretical half-life thereof. The inventive de-
vice comprises an entangled gamma source and a device for sequentially irradiating one or more samples over a period of time which is
determined as a function of the half-life modification to be obtained. The method and device are particularly suitable for medical
and chemical engineering applications.

[Suite sur la page suivante]



WO 2005/109985 A3



FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Déclarations en vertu de la règle 4.17 :

- relative au droit du déposant de demander et d'obtenir un brevet (règle 4.17.ii)) pour les désignations suivantes AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW, brevet ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), brevet eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)
- relative au droit du déposant de demander et d'obtenir un brevet (règle 4.17.ii)) pour les désignations suivantes AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VC, VN, YU, ZA,

ZM, ZW, brevet ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), brevet eurasien (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG)

- relative au droit du déposant de revendiquer la priorité de la demande antérieure (règle 4.17.iii)) pour la désignation suivante US
- relative au droit du déposant de revendiquer la priorité de la demande antérieure (règle 4.17.iii)) pour la désignation suivante US
- relative à la qualité d'inventeur (règle 4.17.iv)) pour US seulement

Publiée :

- avec rapport de recherche internationale
- avec revendications modifiées et déclaration

(88) Date de publication du rapport de recherche

internationale:

9 février 2006

Date de publication des revendications modifiées et de la déclaration:

30 mars 2006

En ce qui concerne les codes à deux lettres et autres abréviations, se référer aux "Notes explicatives relatives aux codes et abréviations" figurant au début de chaque numéro ordinaire de la Gazette du PCT.

(57) Abrégé : Le procédé et l'appareillage pour modifier la probabilité de désexcitation des nucléides isomères consistent à exciter des échantillons contenant des nucléides qui possèdent un état métastable d'une demi-vie allant d'une microseconde à 50 ans. L'excitation est produite par un isotope radioactif qui émet des rayons gamma en cascade ou par la collision de particules accélérées avec une cible par effet Bremstrahlung. Selon la Mécanique Quantique, les rayons gamma produits sont intriqués. Cette intrication est transférée aux nucléides isomères. Chaque isomère du produit radioactif obtenu a alors une demi-vie variable dans le temps initialement plus élevée que sa demi-vie théorique. L'appareillage est constitué d'une source de gamma intriqués et d'un dispositif pour irradier un ou plusieurs échantillons en séquence durant un temps déterminé en fonction de la modification de demi-vie à obtenir. Le procédé et l'appareillage sont particulièrement destinés à des applications de génie chimique et médicales.

REVENDICATIONS MODIFIEES

reçu par le Bureau International le 20 janvier 2005 (20.01.2005),

[revendications 1-8 modifiées, revendication 9 supprimée, revendications 11,13, 16 rajoutées]

+

DECLARATION

1) Produit consistant en un échantillon contenant au moins une sorte de nucléides isomères caractérisé :

- en ce que des groupes de deux ou plusieurs noyaux excités desdits nucléides isomères dudit échantillon, sont intriqués entre eux, ledit échantillon étant appelé par la suite par convention l'échantillon « intriqué », et présentant des liaisons quantiques entre certains des noyaux excités desdits nucléides,
- et, en ce que la demi-vie mesurable sur au moins un nucléide isomère excité de l'échantillon « intriqué », au cours de sa désexcitation naturelle, est variable, due aux liaisons quantiques entre des noyaux excités intriqués dudit nucléide, la demi-vie initiale dudit nucléide étant inférieure à la demi-vie théorique dudit nucléide, et la valeur de la demi-vie dudit nucléide variant de la valeur de la demi-vie initiale à la valeur de la demi-vie théorique dudit nucléide, puis augmentant au delà de cette valeur de ladite demi-vie théorique,

2) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce qu'il comprend un échantillon « intriqué » contenant des noyaux excités d'au moins une sorte de nucléides isomères ayant au moins un état métastable d'une durée de demi-vie d'une microseconde à 50 ans, par exemple, Niobium (93Nb41m), Cadmium (111Cd48m), Cadmium (113Cd48m), Césium (135Cs55m), Indium (115In49m), Etain (117Sn50m), Etain (119Sn50m), Tellure (125Te52m), Xénon (129Xe54m), Xénon (131Xe54m), Hafnium (178Hf72m), Hafnium (179Hf72m), Iridium (193Ir77m), ou encore Platine (195Pt78m), et des isotopes radioactifs.

3) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce qu'il comprend un échantillon « intriqué », sous n'importe quelle forme physique ou chimique, par exemple sous forme de solide en feuille ou en poudre, de liquide ou de gaz (cas du Xénon par exemple) qui contient une proportion d'un ou de plusieurs isotopes, par exemple, Niobium (93Nb41m), Cadmium (111Cd48m), Cadmium (113Cd48m), Césium (135Cs55m), Indium (115In49m), Etain (117Sn50m), Etain (119Sn50m), Tellure (125Te52m), Xénon (129Xe54m), Xénon (131Xe54m), Hafnium (178Hf72m), Hafnium (179Hf72m), Iridium (193Ir77m), Platine (195Pt78m), ou encore des alliages, des mélanges, ou des compo-

- 10 -

sés chimiques incorporant une proportion d'un ou de plusieurs des susdits isotopes.

4) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'échantillon « intriqué » a subi une transformation physique et / ou chimique après sa fabrication.

5) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce que la valeur mesurable de la
5 demi-vie initiale d'au moins un desdits nucléides isomères excités de l'échantillon « intriqué » est strictement inférieure à la demi-vie théorique dudit nucléide, par exemple comprise entre 10% et 100% de la valeur théorique.

6) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'échantillon « intriqué » contient au moins deux nucléides isomères excités.

10 7) Produit selon la revendication 1 caractérisé en ce que l'échantillon « intriqué » contient au moins un nucléide isomère excité à au moins deux états métastables.

8) Procédé de fabrication du produit selon la revendication 1 dans lequel on utilise entre autre:

- au moins une sorte de nucléide isomère,

15 - l'irradiation par des rayons gamma,

caractérisé en ce que :

- on prépare un échantillon contenant des noyaux d'au moins un nucléide isomère ayant au moins un état métastable, par irradiation au moyen de rayons gamma au moins en partie intriqués, d'une énergie suffisante pour exciter certains desdits
20 noyaux du nucléide isomère à au moins un état métastable, lesdits rayons gamma intriqués étant par exemple générés, soit par une source de rayons gamma émis en cascade, soit par un générateur de rayons gamma provenant du Bremstrahlung de particules accélérées, lesdits groupes de rayons gamma, lorsqu'ils sont intriqués, excitant lesdits noyaux correspondants dudit nucléide isomère répartis dans ledit
25 échantillon irradié produit, qualifié dans la suite par convention d'échantillon « intriqué ».

9) Procédé selon la revendication 8 caractérisé en ce que la demi-vie initiale dudit produit obtenu varie avec le temps d'irradiation et la puissance de la source d'irradiation gamma.

30 10) Utilisation du produit selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5, 6 ou 7

- 11 -

caractérisée en ce que l'on emploie le rayonnement gamma, émis par désexcitation naturelle par ledit échantillon « intriqué », comme source émettant initialement une forte dose de rayonnement, puis décroissante, et suivie d'une faible dose de rayonnement pendant longtemps pour irradier l'environnement de l'échantillon « intriqué ».

5 11) Utilisation selon la revendication 10 caractérisée en ce que l'on emploie un échantillon « intriqué » pour conduire une ou plusieurs réactions physico-chimiques.

12) Utilisation selon la revendication 10 caractérisée en ce que l'on emploie un échantillon « intriqué » sous la forme d'une solution.

10 13) Utilisation selon la revendication 10 caractérisée en ce que l'on emploie un échantillon « intriqué » ayant subi une transformation physique ou une transformation chimique après sa fabrication.

14) Utilisation du produit selon la revendication 6 caractérisée en ce que l'on emploie le rayonnement gamma d'au moins deux raies d'énergies différentes émises par au moins deux nucléides pour irradier l'environnement de l'échantillon « intriqué ».

15 15) Utilisation du produit selon la revendication 7 caractérisée en ce que l'on emploie le rayonnement gamma d'au moins deux raies d'énergies différentes émises par un même nucléide pour irradier l'environnement de l'échantillon « intriqué ».

16) Produit selon l'une quelconque des revendications 1, 2, 3, 4, 5, 6 ou 7 à usage médical.

Afin de remédier aux difficultés rencontrées lors de la recherche internationale dans l'opinion écrite de l'administration chargée de la recherche internationale, les revendications ont été modifiées ainsi :

- Revendication de procédé 1 divisée en revendications modifiées de produit 1 et de procédé de fabrication 8 ;
- Revendication de procédé 2 transformée en revendication modifiée de produit 2 ;
- Revendication de procédé 3 divisée en revendications modifiées de produit 6 et d'utilisation 14 ;
- Revendication de procédé 4 divisée en revendications modifiées de produit 7 et d'utilisation 15 ;
- Revendication de procédé 5 transformée en revendication modifiée de produit 5 ;
- Revendication de procédé 6 transformée en revendication modifiée de produit 3 ;
- Revendication de procédé 7 transformée en revendication modifiée d'utilisation 12 ;
- Revendication de procédé 8 transformée en revendication modifiée de produit 4 ;
- Revendication de dispositif 9 supprimée ;
- Revendication d'utilisation 10 modifiée ;
- Nouvelles revendications ajoutées : 11, 13 et 16.

L'ancienne revendication 1, en groupant les étapes du procédé de préparation et d'exploitation du produit intermédiaire constitué par l'échantillon « intriqué » comprenant des noyaux, excités et intriqués, d'au moins une sorte de nucléide isomère, présentant des liaisons quantiques, et en positionnant l'étape de préparation dans la partie non caractérisante de la revendication, pouvait induire dans l'esprit du lecteur une confusion entre l'étape d'excitation et de l'étape d'exploitation du produit par désexcitation naturelle, qui ne comporte pas de stimulation X, et qui sont de natures différentes et séparées dans le temps ; l'étape d'exploitation du produit, par une désexcitation naturelle, caractérisée par une demi-vie variable d'au moins un nucléide, est reportée dans la revendication d'utilisation 10.

La revendication de produit 1 caractérise le produit constitué d'un échantillon « intriqué » dans lequel a été induite la propriété typique de la mécanique quantique d'intrication locale entre des noyaux excités de nucléides isomères dudit échantillon. Les produits radioactifs obtenus ont alors une demi-vie de la désexcitation naturelle variable due aux liaisons entre nucléides intriqués. Les nucléides intriqués se désexcitent simultanément ensemble, ce qui réduit la demi-vie initiale de l'échantillon « intriqué ».

La revendication 8 caractérise un procédé de fabrication du produit selon la revendication 1, qui apprend à l'homme de l'art des moyens nécessaires et suffisants à mettre en œuvre pour

l'obtention dudit produit, en particulier l'irradiation au moyen de rayons gamma, au moins en partie intriqués, d'une énergie suffisante pour exciter certains des noyaux d'un nucléide isomère à au moins un état métastable, appliquée à un échantillon. Cette technique diffère des techniques habituellement utilisées pour l'obtention de nucléides isomères excités, ces autres techniques n'induisant pas la propriété typique d'intrication entre des noyaux excités de nucléides contenus dans un échantillon, et sa conséquence en terme de variabilité de la demi-vie de désexcitation naturelle des noyaux excités intriqués de nucléides.

La revendication 10 caractérise une utilisation d'un produit selon l'une quelconque des revendications 1 à 7 dans laquelle l'échantillon « intriqué » est utilisé comme source émettant initialement une forte dose de rayonnement, puis décroissante, et suivie d'une faible dose de rayonnement pendant longtemps, ce rayonnement gamma étant issu de la désexcitation naturelle de l'échantillon « intriqué », et permettant d'irradier l'environnement de l'échantillon « intriqué » : elle apprend à l'homme de l'art les moyens nécessaires et suffisants pour exploiter ledit échantillon « intriqué » dudit produit comme source d'irradiation.

Contrairement au procédé utilisé dans les références XP-002304655 ou XP-008038352, il n'est fait durant cette exploitation, ni utilisation d'une excitation gamma additionnelle, ni utilisation d'une stimulation X.

Le produit revendiqué donne lieu à une variation de la demi-vie, de la désexcitation naturelle des noyaux excités intriqués de nucléides, durable dans le temps, alors que les produits nucléides isomères décrits dans XP-002304655 ou XP-008038352 donnent lieu à une désexcitation accélérée instantanée (« prompt »), non durable de façon significative dans le temps, à l'aide d'une stimulation par rayons X de moins de 300 keV ou de moins de 30 keV selon la référence.

A la date de l'invention, l'homme de l'art n'avait pas connaissance, ni l'usage du produit constitué par l'échantillon « intriqué », pour l'utiliser comme source émettant initialement une forte dose de rayonnement, puis décroissante, et suivie d'une faible dose de rayonnement pendant longtemps.

La revendication 15 est ajoutée pour revendiquer les produits séparément pour des applications médicales.